

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)
20 March 2001 (20.03.01)

International application No.
PCT/EP00/05514

Applicant's or agent's file reference
NAE19980978PC

International filing date (day/month/year)
28 June 2000 (28.06.00)

Priority date (day/month/year)
29 June 1999 (29.06.99)

Applicant

HEITZ, Thomas et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
29 January 2001 (29.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Claudio Borton

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
4. Januar 2001 (04.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/00705 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: C08G 63/78
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/05514
- (22) Internationales Anmeldedatum:
28. Juni 2000 (28.06.2000)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
199 29 790.8 29. Juni 1999 (29.06.1999) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): HEITZ, Thomas [DE/DE]; Lessingstr. 15, 67125 Dannstadt-Schauernheim (DE). KLATT, Martin [DE/DE]; Beethovenstr. 5, 68165 Mannheim (DE). NEUHAUS, Ralf [DE/DE]; Stephanie-Pellissier-Strasse 1, 69124 Heidelberg (DE).
- (74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle-Pagenberg-Dost-Altenburg-Geissler-Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, 68165 Mannheim (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- Veröffentlicht:**
— Mit internationalem Recherchenbericht.
— Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.
- Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR THE CONTINUOUS PRODUCTION OF POLYBUTYLENETEREPHTHALATE FROM TEREPHTHALIC ACID AND BUTANEDIOL

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR KONTINUIERLICHEN HERSTELLUNG VON POLYBUTYLENTEREPHTHALAT AUS TEREPHTHALSÄURE UND BUTANDIOL

(57) Abstract: The invention relates to a method for the continuous production of polybutyleneterephthalate from terephthalic acid and 1,4-butanediol, comprising the following: d) the direct esterification of terephthalic acid with 1,4-butanediol in a reactor series consisting of at least two reactors; e) the precondensation of the product of esterification obtained in step a); f) the polycondensation of the precondensate obtained in step b). The reactor series in step a) is operated with a falling reaction pressure and a non-rising temperature.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Polybutyleneterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol, umfassend: d) direkte Veresterung von Terephthalsäure mit 1,4-Butandiol in einer Reaktorkaskade aus mindestens zwei Reaktoren, e) Vorkondensation des in Stufe a) erhaltenen Veresterungsproduktes, f) Polykondensation des in Stufe b) erhaltenen Vorkondensats, wobei die Reaktorkaskade in Stufe a) mit fallendem Reaktionsdruck und nicht ansteigender Temperatur betrieben wird.

WO 01/00705 A1

5

**Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Polybutylen-
terephthalat aus Terephthalsäure und Butandiol**

- 10 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Polybutylenterephthalat (PBT) aus Terephthalsäure (TPA) und 1,4-Butandiol (BDO).

Die Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Dimethylterephthalat (DMT)
15 und 1,4-Butandiol ist aus dem Stand der Technik bekannt. Nachteilig bei diesem Verfahren ist, daß als Nebenprodukt in geringen Mengen entstehendes Tetrahydrofuran (THF) mit dem während der Umsetzung freiwerdenden Methanol ein Azeotrop bildet und daher nur unter großem Aufwand als Wertstoff zurückgewonnen werden kann.

20

Die direkte Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol wird dadurch erschwert, daß größere Mengen THF gebildet werden, wodurch für die Umsetzung erforderliches 1,4-Butandiol verloren geht. Des
weiteren wird, neben THF, 2,5-Dihydrofuran (2,5-DHF) aus 1,4-Butandiol
25 gebildet. Das 2,5-Dihydrofuran ist destillativ nur schwer von THF abzutrennen und mindert daher als Verunreinigung die Qualität des Wertproduktes THF. Ein weiteres Problem bei der direkten Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol liegt darin, daß Terephthalsäure in 1,4-Butandiol nicht löslich ist und erst während der Veresterung mit 1,4-Butandiol in
30 Lösung geht. Für die Qualität des hergestellten Polybutylenterephthalats ist es jedoch außerordentlich wichtig, daß dieses frei von Verunreinigungen, wie freien Säuregruppen aus Terephthalsäure, ist. Daher sollte die Terephthalsäure

vollständig verestert und gelöst sein, bevor die eigentliche Polykondensation beginnt.

Aus dem Stand der Technik sind bereits Verfahren bekannt, die die direkte
5 Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol betreffen.

DD-A 269 296 betrifft ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von
Polyalkylenterephthalaten. Durch die Einstellung der Reaktionsparameter in der
10 Veresterungsstufe der eingesetzten Dicarbonsäure mit dem eingesetzten Glykol soll der Wasserabtrieb aus der Veresterungsphase entscheidend begünstigt werden, so daß Veresterungsprodukte sowohl mit hohem Umsatzgrad als auch mit hohem mittlerem Polymerisationsgrad erhalten werden. Die Veresterungsstufe wird in einer Reaktorkaskade durchgeführt, in der von Reaktor zu Reaktor eine
15 Temperaturerhöhung und Druckerniedrigung erfolgt. Das angegebene Ausführungsbeispiel betrifft die Herstellung von Polyethylenterephthalat aus Terephthalsäure und Ethylenglykol.

In EP-A 0 431 977 ist ein Verfahren zur Erhöhung der direkten Veresterungs-
20 geschwindigkeit einer Disäure und 1,4-Butandiol bis zu einer Veresterung von > 95% der Säuregruppen beschrieben. Das Verfahren kann kontinuierlich in drei Reaktoren erfolgen. Das beschriebene Verfahren umfaßt:

- a) Mischen von 1,4-Butandiol und Disäure in einem Verhältnis von mindestens
25 2:1,
- b) Erhitzen der Reaktionsmischung auf 180°C,
- c) Zugabe eines geeigneten Katalysators,
- d) Reaktion bei Atmosphärendruck und einer mittleren Temperatur von 180 bis
245°C für maximal 60 Minuten.

30

Mit Hilfe dieses Verfahrens sollen weniger als 5% 1,4-Butandiol zu THF
zyklisieren. Der Gehalt an freien Säuregruppen im Endprodukt ist jedoch hoch.

In DE-A 44 15 220 ist ein Verfahren zur Herstellung von Polyestern in einer speziellen Vorrichtung beschrieben. Das Verfahren wird unter fallendem hydrostatischen Druck und steigender Reaktionstemperatur durchgeführt. Zur THF-Bildung werden keine Angaben gemacht.

5

DE-A 35 44 551 betrifft die kontinuierliche Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol. Die Herstellung erfolgt in drei Stufen. Die erste Stufe, die Veresterung, wird bei einer Temperatur von 225 bis 260°C und einem Druck von 0,1 bis 1 bar durchgeführt. Die zweite
10 Stufe, die Vorkondensation, wird bei Temperaturen von 230 bis 260°C und einem Druck von 10 bis 200 mbar durchgeführt und die dritte Stufe, die Polykondensation, bei Temperaturen von 240 bis 265°C und einem Druck von 0,25 bis 25 mbar.

15 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein gegenüber dem Stand der Technik verbessertes Verfahren zur Herstellung von Polybutylenterephthalat bereitzustellen. Insbesondere soll die THF- und 2,5-Dihydrofuran-Bildung aus dem eingesetzten 1,4-Butandiol möglichst gering sein, und das erhaltene Polybutylenterephthalat soll einen möglichst geringen Anteil an freien
20 Säuregruppen enthalten.

Die Lösung der Aufgabe geht aus einem Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Polybutylenterephthalat aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol, umfassend:

25

- a) direkte Veresterung von Terephthalsäure mit 1,4-Butandiol in einer Reaktorkaskade aus mindestens zwei Reaktoren,
- b) Vorkondensation des in Stufe a) erhaltenen Veresterungsproduktes,
- c) Polykondensation des in Stufe b) erhaltenen Vorkondensats.

30

Das erfindungsgemäße Verfahren ist dann dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktorkaskade in Stufe a) mit fallendem Reaktionsdruck und nicht ansteigender Temperatur betrieben wird.

- 5 Das mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens hergestellte Polybutylenterephthalat weist eine hervorragende Qualität auf. Es zeichnet sich durch einen geringen Anteil von Säure- und Alkohol-Gruppen aus. Die Bildung von THF und 2,5-Dihydrofuran aus 1,4-Butandiol ist in dem erfindungsgemäßen Verfahren gering. Dadurch geht nur wenig 1,4-Butandiol verloren, so daß die
10 Ausbeute an Polybutylenterephthalat, bezogen auf 1,4-Butandiol, hoch ist.

a) Veresterungsstufe

- Die Stufe a) wird in einer Reaktorkaskade aus mindestens zwei Reaktoren,
15 bevorzugt aus zwei bis fünf Reaktoren, besonders bevorzugt aus drei Reaktoren durchgeführt. Als Reaktoren werden im allgemeinen Rührkessel eingesetzt.

- Erfindungsgemäß wird die Veresterungsstufe in einer Reaktorkaskade durchgeführt, wobei der Reaktionsdruck von Reaktor zu Reaktor fällt.
20 Vorzugsweise wird bei einem Druck von < 1 bar verestert.

- Bei einer Reaktorkaskade von drei Reaktoren wird im ersten Reaktor im allgemeinen ein Druck (p_1) von < 1 bar, bevorzugt von < 900 mbar, besonders bevorzugt von < 800 mbar eingestellt. Der Druck im zweiten Reaktor (p_2) ist $< p_1$, bevorzugt $< p_1 - 100$ mbar, besonders bevorzugt $< p_1 - 150$ mbar. Im dritten
25 Reaktor wird bei einem Druck (p_3) von $< p_2$, bevorzugt von $< p_2 - 100$ mbar verestert. So beträgt der Druck vorzugsweise im ersten Reaktor (p_1) 650 bis 900 mbar, im zweiten Reaktor (p_2) 500 bis 700 mbar und im dritten Reaktor (p_3) 350 bis 600 mbar, wobei der Druck in den einzelnen Reaktoren im Rahmen der
30 genannten Bereiche von Reaktor zu Reaktor fällt.

Durch die bevorzugte Verfahrensführung mit einem Druck von weniger als 1 bar wird die THF-Bildung aus 1,4-Butandiol noch besser unterdrückt.

Der Temperaturbereich für die gesamte Veresterungsstufe liegt im allgemeinen bei 170 bis 250°C, bevorzugt bei 180 bis 240°C, besonders bevorzugt bei 190 bis 230°C. Erfindungsgemäß wird die Reaktorkaskade mit nicht ansteigender Temperaturführung betrieben, d.h. die Veresterungstemperatur ist in jedem Reaktor der Reaktorkaskade etwa gleich oder sinkt von Reaktor zu Reaktor.

Die Verweilzeiten für die gesamte Veresterungsstufe liegen im allgemeinen bei 140 bis 430 Minuten, bevorzugt bei 160 bis 420 Minuten, besonders bevorzugt bei 170 bis 390 Minuten. Bei einer Reaktorkaskade von drei Reaktoren beträgt die Verweilzeit im ersten Reaktor (V1) im allgemeinen 100 bis 250 Minuten, bevorzugt 110 bis 250 Minuten, besonders bevorzugt 120 bis 240 Minuten, im zweiten Reaktor (V2) im allgemeinen 20 bis 105 Minuten, bevorzugt 30 bis 100 Minuten, besonders bevorzugt 30 bis 90 Minuten und im dritten Reaktor (V3) im allgemeinen 20 bis 75 Minuten, bevorzugt 20 bis 70 Minuten, besonders bevorzugt 20 bis 60 Minuten.

Für die Veresterung wird im allgemeinen ein molarer Überschuß von 1,4-Butandiol eingesetzt, um das Estergleichgewicht in der gewünschten Richtung zu beeinflussen. Die molaren Verhältnisse von 1,4-Butandiol zu Terephthalsäure betragen im allgemeinen von 1,1 zu 1 bis 3,5 zu 1, bevorzugt von 1,5 zu 1 bis 2,8 zu 1, besonders bevorzugt von 1,9 zu 1 bis 2,5 zu 1.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird eine Suspension enthaltend 1,4-Butandiol und Terephthalsäure in einem molaren Verhältnis von im allgemeinen < 2 zu 1, bevorzugt von < 1,5 zu 1 in ein Vorlagegefäß überführt und mit heißem 1,4-Butandiol auf 50 bis 100°C, bevorzugt auf 60 bis 100°C, besonders bevorzugt auf 70 bis 90°C erwärmt und verdünnt, so daß das Verhältnis von 1,4-Butandiol zu Terephthalsäure dem genannten Endverhältnis entspricht.

Zu diesem BDO/TPA-Gemisch wird ein Veresterungskatalysator gegeben, im allgemeinen eine lewissaure Metallverbindung, wobei das bevorzugte Metall Titan oder Zinn ist. Besonders bevorzugte Veresterungskatalysatoren sind Tetrabutylorthotitanat (TBOT), Triisopropyltitanat und Zinn-di-octeat, wobei Tetrabutylorthotitanat ganz besonders bevorzugt ist. Der Katalysator wird in der Veresterungsstufe im allgemeinen in Mengen von < 200 ppm, bevorzugt von 65 bis 150, besonders bevorzugt von 75 bis 100, berechnet auf das Metall des eingesetzten Veresterungskatalysators, bezogen auf Polybutylenterephthalat, eingesetzt. Dabei kann der gesamte Katalysator dem ersten Reaktor zugesetzt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform wird jedoch nur ein Teil der Katalysatormenge, bevorzugt < 50 ppm, besonders bevorzugt < 25 ppm, berechnet auf das Metall, bezogen auf Polybutylenterephthalat, in den ersten Reaktor und der restliche Teil der Katalysatormenge in die folgenden Reaktoren, bevorzugt in den zweiten Reaktor, gegeben. Vorzugsweise wird der Veresterungskatalysator, gemischt mit 1,4-Butandiol, dem Reaktor zugeführt.

Die Reaktionsmischung enthaltend Terephthalsäure, 1,4-Butandiol und einen Veresterungskatalysator wird in einer Reaktorkaskade bis zu einem Umsatz von im allgemeinen $> 97\%$, bevorzugt von 97 bis 99%, bezogen auf Terephthalsäure, umgesetzt. Wird die Veresterungsstufe in einer Reaktorkaskade mit drei Reaktoren durchgeführt, so wird im ersten Reaktor im allgemeinen bis zu einem Umsatz (U1) von $> 89\%$ verestert. Das entstehende THF/Wasser-Gemisch wird abgetrennt und das Reaktionsgemisch wird in den zweiten Reaktor überführt, in dem bis zu einem Umsatz (U2) von im allgemeinen $> 95\%$ verestert wird. Im allgemeinen ist zu diesem Zeitpunkt bereits die gesamte Terephthalsäure umgesetzt oder in Lösung, was an einem klaren Reaktionsgemisch erkennbar ist (Klärpunkt). Das Reaktionsgemisch wird zur Sicherheit bevorzugt in einen dritten Reaktor überführt und bis zu einem Umsatz (U3) von im allgemeinen $> 97\%$ verestert.

Das erhaltene Reaktionsgemisch wird anschließend kontinuierlich in das Veresterungsprodukt und ein THF/BDO/Wasser-Gemisch aufgetrennt. Das THF/BDO/Wasser-Gemisch wird in einem Kolonnensystem getrennt und zurückgewonnenes 1,4-Butandiol wird in den ersten Veresterungsreaktor
5 zurückgeführt. Das Veresterungsprodukt wird kontinuierlich in die Vorkondensationsstufe b) überführt.

b) Vorkondensationsstufe

10 Die Vorkondensationsstufe weist im allgemeinen mindestens zwei, bevorzugt mindestens drei, besonders bevorzugt mindestens vier Temperaturzonen auf. Die Temperatur einer folgenden Zone liegt hierbei im allgemeinen 1 bis 25°C, bevorzugt 1 bis 15°C, besonders bevorzugt 1 bis 10°C höher als die Temperatur einer vorhergehenden Zone. Der Temperaturbereich für die gesamte
15 Vorkondensation liegt im allgemeinen bei 220 bis 300°C, bevorzugt bei 225 bis 290°C, besonders bevorzugt bei 230 bis 260°C.

Im allgemeinen erfolgt die Vorkondensation in einem Druckbereich zwischen 0,05 bar und dem Veresterungsdruck in dem letzten Reaktor der Reaktorkaskade
20 der Veresterungsstufe. Bevorzugt erfolgt sie in der Weise, daß in der ersten Zone der Druck dem Reaktionsdruck in dem letzten Veresterungsreaktor entspricht, und in den folgenden Zonen im allgemeinen 20 bis 500 mbar, bevorzugt 25 bis 450 mbar, besonders bevorzugt 30 bis 400 mbar beträgt, wobei der Druck vorzugsweise von einer Zone zur darauffolgenden Zone sinkt.

25 Vorzugsweise wird die Vorkondensation in einem Steigrohrreaktor durchgeführt.

Die Verweilzeiten betragen für die gesamte Stufe b) des Verfahrens im allgemeinen 10 bis 80 Minuten, bevorzugt 15 bis 70 Minuten, besonders
30 bevorzugt 30 bis 60 Minuten. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird die Vorkondensation in vier Temperaturzonen durchgeführt, wobei die Temperatur von Zone zu Zone in den oben beschriebenen Verhältnissen leicht

ansteigt und der Druck von der ersten bis zur vierten Zone innerhalb der beschriebenen Grenzen reduziert wird. Die vierte Zone besteht bei dieser bevorzugten Ausführungsform aus einer Vorrichtung zur Trennung von Dampf- und Flüssigphase. Dort werden überschüssiges 1,4-Butandiol, THF und Wasser
5 vom Vorkondensat abgetrennt.

Die in der Veresterungsstufe des erfindungsgemäßen Verfahrens genannten Katalysatoren können in den genannten Mengen ebenfalls in die Vorkondensationsstufe zudosiert werden.

10

Nach der Vorkondensation weist das Vorkondensat eine Viskositätszahl von im allgemeinen 5 bis 50, bevorzugt 15 bis 40 ml/g auf, gemessen als 0,5 gew.-%ige Lösung in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1) gemäß ISO 1628, Teil 3 (1985) bei 25°C.

15 Das Vorkondensat wird anschließend in den Polykondensationsreaktor (Stufe c)) überführt.

c) Polykondensationsstufe

20 Die Stufe c) wird im allgemeinen einzonig durchgeführt, bei Temperaturen von im allgemeinen 240 bis 290°C, bevorzugt von 240 bis 270°C, besonders bevorzugt von 240 bis 265°C. Der Druck beträgt im allgemeinen 0,2 bis 20 mbar, bevorzugt 0,3 bis 10 mbar.

25 Die Verweilzeiten betragen üblicherweise 30 bis 180 Minuten, bevorzugt 35 bis 150 Minuten.

Während der Polykondensation wird vorzugsweise eine Oberflächenerneuerung des Produktes vorgenommen. Oberflächenerneuerung bedeutet, daß ständig neues
30 Polymer an die Oberfläche der Schmelze gelangt, so daß der Austritt des Diols

erleichtert wird. Diese beträgt vorzugsweise 1 bis 20 m²/kg Produkt und Minute, besonders bevorzugt 1,5 bis 6 m²/kg Produkt und Minute.

Im allgemeinen wird in der Polykondensationsstufe kein weiterer Katalysator
5 zugegeben, es kann jedoch auch in dieser Stufe des Verfahrens ein Katalysator, beispielsweise wie er vorstehend beschrieben wurde, zugegeben werden.

Nach der kontinuierlichen Polykondensation weist der Polyester eine Viskositätszahl von im allgemeinen 60 bis 180 ml/g, bevorzugt von 90 bis 160
10 ml/g auf, bestimmt in einer 0,5 gew.-%igen Lösung in einem Phenol/o-Dichlorbenzolgemisch (Gewichtsverhältnis 1:1 bei 25°C) gemäß ISO 1628, 3. Teil (1985).

Bevorzugt werden in der Polykondensationsstufe des erfindungsgemäßen
15 Verfahrens bei Erreichen von mindestens 80%, bevorzugt von mindestens 95%, besonders bevorzugt von 100% der gewünschten Endviskositätszahl des Polyesters Schmier- und Nukleierungsmittel der Polymerschmelze gemeinsam zugegeben, die Schmelze wird gegebenenfalls nachkondensiert und anschließend ausgetragen, abgekühlt und granuliert. Bevorzugt erfolgt die Zugabe des
20 Schmiermittels in einer Menge von im allgemeinen 0,01 bis 3 Gew.-%, bevorzugt von 0,1 bis 1 Gew.-%, besonders bevorzugt von 0,2 bis 0,8 Gew.-% und des Nukleierungsmittels in einer Menge von im allgemeinen 0,001 bis 2 Gew.-%, bevorzugt von 0,01 bis 1 Gew.-%, besonders bevorzugt von 0,03 bis 0,5 Gew.-%, jeweils bezogen auf 100 Gew.-% des Polybutylenterephthalats.

25

Besonders bevorzugt erfolgt die Zugabe in Form einer Suspension, wobei man das Nukleierungsmittel vor der Zugabe zur Schmelze gegebenenfalls bei erhöhter Temperatur im Schmiermittel suspendiert. Je nach Art des eingesetzten Schmiermittels kann es zur Herstellung einer Suspension erforderlich sein, die
30 Mischung aus Schmiermittel und Nukleierungsmittel vorab auf Temperaturen von im allgemeinen 30 bis 150°C, bevorzugt von 60 bis 130°C zu erhitzen und anschließend zur Polymerschmelze zuzugeben.

Beispiele für geeignete Schmiermittel sind niedermolekulare Polyethylenwachse, welche bei Raumtemperatur in fester Form vorliegen und zur Herstellung einer Suspension mit dem Nukleierungsmittel erhitzt werden müssen. Solche Schmiermittel sind niedermolekulare Polyethylenwachse, welche vorzugsweise funktionelle Gruppen, wie Glycidyl- und/oder Carboxylgruppen enthalten können, mit einem mittleren Molekulargewicht M_n (Zahlenmittel) von im allgemeinen 500 bis 20000, bevorzugt von 1000 bis 10000, besonders bevorzugt von 1000 bis 5000 und ganz besonders bevorzugt von 1000 bis 3000 g/mol.

Das Molekulargewicht wird üblicherweise durch Gelpermeationschromatographie (GPC) mit LDPE-Standard (low density polyethylene) bestimmt. Die Schmelzviskosität beträgt bevorzugt 100 bis 5000, besonders bevorzugt 100 bis 3000 und ganz besonders bevorzugt 100 bis 2000 mm²/g (gemäß DIN 51 562) bei einer Temperatur von 120°C.

Als Nukleierungsmittel eignen sich insbesondere Mineralien aus der Gruppe der Alkali- und/oder Erdalkali(alumo)silikate, bevorzugt aus der Gruppe der Inselsilikate oder Schichtsilikate. Es können alle möglichen Verbindungen wie Hydroxide, Carbonate, Hydroxycarbonate, Sulfate, Silikate sowie Phosphate und Phosphonate verwendet werden. Als weitere geeignete Nukleierungsmittel seien Alkali- oder Erdalkalisalze von organischen oder anorganischen Säuren genannt wie Natriumantimonat, Calciumstearat, Natriumterephthalat, Calciumcitrat sowie Metallsäuren (basische Säuren) des Titans oder Wolframs.

Geeignete Derivate von anorganischen Säuren sind vorzugsweise Phosphorsäurederivate, wobei Natriumphenylphosphinat, Zinkphosphat, Calcium (bis -3,5-di-tert.-butylethyl)phosphonat (Irganox® 1425 der Ciba Geigy AG) sowie Tetrakis(2,4-di-tert.-butylphenyl)-4,4-biphenylendiphosphonit besonders bevorzugt wird.

Geeignete Polykondensationsvorrichtungen sind dem Fachmann bekannt. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform kann man die Schmelze aus dem Polykondensationsreaktor austragen, über geeignete Vorrichtungen, z.B. eine Dosierpumpe mit Heizung, die Mischung aus Schmier- und Nukleierungsmittel
5 zugeben und die Polymerschmelze anschließend in z.B. ein „Sulzerrohr“ überführen und auf die gewünschte Endviskositätszahl kondensieren, wobei eine Homogenisierung der Schmelze erfolgt, anschließend austragen, kühlen und granulieren.

- 10 Das erhaltene Polybutylenterephthalat weist im allgemeinen eine Säurezahl von < 50 mval/kg, bevorzugt von < 35 mval/kg, besonders bevorzugt < 30 mval/kg auf. Die Säurezahl wird durch Titration mit Natriumhydroxid bestimmt.

Das erfindungsgemäße Verfahren hat den Vorteil, daß nur geringe Mengen THF
15 aus 1,4-Butandiol gebildet werden, und somit nur wenig 1,4-Butandiol verloren geht. Im allgemeinen ist der Anteil an gebildetem THF, bezogen auf die erhaltene Menge Polybutylenterephthalat, < 5 Gew.-%, bevorzugt < 4 Gew.-%, besonders bevorzugt < 3,5 Gew.-%. Ebenso wird nur wenig 2,5-Dihydrofuran aus 1,4-Butandiol gebildet. Vorzugsweise ist der Anteil an gebildetem 2,5-Dihydrofuran,
20 bezogen auf die erhaltene Menge Polybutylenterephthalat, < 150 ppm, besonders bevorzugt < 100 ppm.

Die nachfolgenden Beispiele erläutern die Erfindung zusätzlich.

25 BEISPIELE

Versuchsvorschrift: *Veresterungsstufe bei konstanter Temperatur und fallendem Druck*

- 30 Terephthalsäure wird mit 1,4-Butandiol in einem molaren Verhältnis von Terephthalsäure zu 1,4-Butandiol = 1:1,2 mol vorgemischt und in einen Reaktionskessel R1 vorgelegt und mit 1,4-Butandiol aufgefüllt. In das 1,4-

- Butandiol wird TBOT (1), d.h. ein Teil des Veresterungskatalysators, eingemischt. Das Gemisch durchläuft insgesamt 8 Reaktionszonen (3 Reaktionskessel R1 bis R3 (Veresterungsstufe a)), 4 Reaktionszonen in einem senkrecht stehenden Rohr R4 bis R7 (Vorkondensationsstufe b)) sowie den
- 5 Polykondensationsreaktor R8 (Polykondensationsstufe c))) bis zum endgültigen Polybutylenterephthalat mit den Temperaturen T1 bis T8, und den Drücken p1 bis p8 und den Verweildauern V1 bis V8, wobei die Drücke p1 bis p3 in den Reaktionszonen R1 bis R3 abnehmen. In R2 wurde eine zusätzliche Menge TBOT (2) dosiert. Die Destillate aus R1 bis R3, welche im wesentlichen 1,4-Butandiol,
- 10 THF und Wasser enthielten, wurden kontinuierlich in einem Kolonnensystem getrennt und 1,4-Butandiol in R1 zurückgeführt und der Rest (im wesentlichen Wasser und THF) in einem Sammelgefäß kondensiert und analysiert. Das Sammelgefäß für die Destillate wurde mit einem Kryostaten auf -20°C gekühlt, damit das leicht flüchtige THF nicht verdampft. Zusätzlich wurde am Überlauf
- 15 zwischen R1 und R2, R2 und R3 sowie R3 und R4 eine Probe entnommen und durch Bestimmung der Säurezahl der Umsatz U1 bis U3 bestimmt. Das Erreichen des Klärpunktes wurde visuell bestimmt. THF wurde quantitativ mittels Gaschromatographie bestimmt und ins Verhältnis zur erhaltenen Menge Polybutylenterephthalat gesetzt, d.h., bei einer THF-Bildung von 5% entstehen
- 20 pro Kilogramm Polybutylenterephthalat 50g THF. Die Endgruppen der erhaltenen Polybutylenterephthalat-Produkte wurden mittels Titration bestimmt. Die Viskositätsmessung (VZ-Messung) erfolgte gemäß ISO 1628 in Phenol/o-Dichlorbenzol.
- 25 Das Veresterungsprodukt wurde einem senkrecht stehenden Rohr zugeführt, das in vier Heizzonen unterteilt war.

Die Temperatur in der vierten Reaktionszone betrug 247°C bei einem Druck, der dem Druck im dritten Reaktor der Veresterungsstufe entsprach und einer mittleren

30 Verweilzeit von 22 min.

Die Temperatur in der fünften Reaktionszone betrug 252°C bei einem Druck von 400 mbar und einer mittleren Verweilzeit von 11 min.

Die Temperatur in der sechsten Reaktionszone betrug 256°C bei einem Druck von 30 mbar und einer mittleren Verweilzeit von 18 min.

Das überschüssige 1,4-Butandiol und die Reaktionsprodukte wie THF und Wasser wurden am oberen Ende des Reaktionsrohres abgetrennt. Das Vorkondensat wurde ohne weitere Zugabe von Katalysatoren in einen Polykondensationsreaktor (Zone 8) überführt.

Die Temperatur in der achten Reaktionszone betrug 257°C bei einem Druck von 0,4 mbar, einer mittleren Verweilzeit von 115 min und einer Oberflächenenerneuerung von 4 m²/h*kg Polybutylenterephthalat.

15

Tabelle 1 zeigt die gemäß der Versuchsvorschrift erhaltenen Ergebnisse sowie die Ergebnisse der Vergleichsversuche V1 bis V4.

Nicht variierte Versuchsparameter:

20	T4, T5, T6, T7, T8 =	247°C, 252°C, 255°C, 256°C und 257°C
	p4 =	p3
	p5, p6, p7, p8 =	400 mbar, 150 mbar, 30 mbar und 0,4 mbar
	V4, V5, V6, V7, V8 =	22 Minuten, 11 Minuten, 5 Minuten, 18 Minuten und 115 Minuten
25	Durchsatz: BDO:TPA =	450 g/h: 690 g/h
	Ausbeute an PBT:	910 g/h

Tabelle 1:

	1	2	3	4	5	6	V1 (**)	V2	V4 (***)
TBOT (1)	15	15	15	15	20	20	15	15	75
TBOT (2)	100	100	100	100	100	100	100	100	-
BDO (g/h)	370	370	370	370	370	370	370	370	420
p1	800	850	900	900	600	600	800	800	650
p2	600	650	700	700	500	500	700	800	
p3	400	500	600	600	400	400	600	800	
T1	215	220	225	230	210	210	215	215	217
T2	215	220	225	230	210	210	225	215	-
T3	215	220	225	230	210	210	230	215	-
V1	182	182	182	182	182	212	182	182	182
V2	63	63	63	63	63	78	63	63	-
V3	40	40	40	40	40	65	40	40	-
U1	90,3	90,8	91,1	93,5	87,2	89,2	90,4	90,2	90,5
U2	92,1	93,5	93,9	96,1	91,4	92,7	94,1	91,7	-
U3	97,8	98,1	98,2	98,4	94,2	95,3	98,5	96,3	-
Klärpunkt	Ja	Ja	Ja	Ja	Ja (*)	Ja	Ja	Ja	Nein
THF (%)	2,14	2,11	2,37	2,53	2,01	2,21	3,89	3,15	7,32
2,5 DHF (%)	0,012	0,010	0,013	0,018	0,009	0,015	0,036	0,028	0,042
OH	24	25	23	24	24	23	23	24	52
COOH	25	25	25	24	41	24	24	25	143
VZ	125	122	126	131	130	128	125	127	95

(*)= Bei den Versuchen unter den Bedingungen war die Reaktionslösung noch ganz schwach trübe.

5

(**)= Analog zu DD-A 269 296, fallender Druck, steigende Temperatur.

- (***)=Analog zu DE-A 35 445 51, Ex. 9, abweichend zu den vorhergehenden Versuchen wurde die Veresterung bei einem Druck von 0,65 bar durchgeführt. Da der Siedepunkt von 1,4-Butandiol bei 0,65 bar bei ca. 210°C liegt, konnte die in Ex. 9 beschriebene Reaktionstemperatur (245°C) nicht erreicht werden. Bei
- 5 Erhöhung der Temperatur des Wärmebades destillierte 1,4-Butandiol ab, wodurch sich die Temperatur des Reaktionsgemisches auf 217°C einstellte.

Patentansprüche

1. Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Polybutylenterephthalat
5 aus Terephthalsäure und 1,4-Butandiol, umfassend:
- a) direkte Veresterung von Terephthalsäure mit 1,4-Butandiol in einer
Reaktorkaskade aus mindestens zwei Reaktoren,
 - b) Vorkondensation des in Stufe a) erhaltenen Veresterungsproduktes,
 - 10 c) Polykondensation des in Stufe b) erhaltenen Vorkondensats,
- dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktorkaskade in Stufe a) mit fallendem
Reaktionsdruck und nicht ansteigender Temperatur betrieben wird.
- 15 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Veresterung
in Stufe a) bei Drücken von < 1 bar durchgeführt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß in einer
Reaktorkaskade von drei Reaktoren der Druck im ersten Reaktor (p_1) < 1
20 bar, der Druck im zweiten Reaktor (p_2) $< p_1 - 100$ mbar und der Druck im
dritten Reaktor (p_3) $< p_2$ ist.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß
die Stufe a) bei einer Temperatur von 170 bis 250°C durchgeführt wird.
- 25 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß
das molare Verhältnis von 1,4-Butandiol zu Terephthalsäure zu Beginn der
Stufe a) 1,1:1 bis 3,5:1 beträgt.
- 30 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß
der Umsatz nach dem letzten Reaktor der Stufe a) $> 97\%$ beträgt, bezogen
auf Terephthalsäure, bevor die Vorkondensation in Stufe b) beginnt.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Stufe a) in Gegenwart eines Katalysators, bevorzugt Tetrabutylorthotitanat, durchgeführt wird.
- 5
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Stufe b) bei Temperaturen zwischen 220 und 300°C und Drücken zwischen 0,05 bar und dem Veresterungsdruck in dem letzten Reaktor der Reaktorkaskade der Stufe a) erfolgt.
- 10
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß das in der Stufe b) erhaltene Vorkondensat in der Stufe c) bei Temperaturen von 240 bis 290°C und Drücken von 0,2 bis 20 mbar polykondensiert wird.
- 15
10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß solange polykondensiert wird, bis das erhaltene Polykondensat eine Säurezahl von < 50 mval/kg aufweist.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESEN

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

ISENBRUCK, Günter
BARDEHLE PAGENBERG DOST
ALTENBURG GEISSLER ISENBRUCK
Theodor-Heuss-Anlage 12
D-68165 Mannheim
ALLEMAGNE

Patentk. Rechtsanwälte
Mannheim

24. JULI 2001

Frist:
Bear.:

Qb → AEW

PCT

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS
(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr) 23.07.2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
NAE19980978PC

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP00/05514

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)
28/06/2000

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
29/06/1999

Anmelder
BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.

4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde

 Europäisches Patentamt
D-80298 München
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Connolly, M

Tel. +49 89 2399-8021



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts NAE19980978PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05514	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 28/06/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 29/06/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G63/78		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		



1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

 - I ☒ Grundlage des Berichts
 - II ☐ Priorität
 - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
 - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 29/01/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 23.07.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Ramos Flores, C Tel. Nr. +49 89 2399 8310 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-15 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-10 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: GB-A-2 184 129 (DAVY MCKEE AG) 17. Juni 1987 (1987-06-17) & DE 35 44 551 A 19. Juni 1987 (1987-06-19) in der Anmeldung erwähnt

D2: DD 269 296 A (ENGELS CHEMIEFASERWERK VEB) 28. Juni 1989 (1989-06-28) in der Anmeldung erwähnt

2. Der Anspruchsgegenstand erfüllt die Erfordernisse der Art. 33(2) und 33(3) PCT im Hinblick auf den zitierten Stand der Technik.

D1 oder D2 können als nächstliegenden Stand der Technik betrachtet werden. Gegenüber beiden Lehren hat der Anmelder gezeigt, daß das beanspruchte Verfahren zu Polyestern führt mit einem niedrigeren THF und DHF Gehalt.

3. Der Anspruchsgegenstand ist gewerblich anwendbar.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05514

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 25 JUL 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT) T1b


Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts NAE19980978PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05514	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 28/06/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 29/06/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G63/78		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 29/01/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 23.07.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Ramos Flores, C Tel. Nr. +49 89 2399 8310



1. Grundlag des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-15 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-10 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05514

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: GB-A-2 184 129 (DAVY MCKEE AG) 17. Juni 1987 (1987-06-17) & DE 35 44 551 A 19. Juni 1987 (1987-06-19) in der Anmeldung erwähnt

D2: DD 269 296 A (ENGELS CHEMIEFASERWERK VEB) 28. Juni 1989 (1989-06-28) in der Anmeldung erwähnt

2. Der Anspruchsgegenstand erfüllt die Erfordernisse der Art. 33(2) und 33(3) PCT im Hinblick auf den zitierten Stand der Technik.

D1 oder D2 können als nächstliegenden Stand der Technik betrachtet werden. Gegenüber beiden Lehren hat der Anmelder gezeigt, daß das beanspruchte Verfahren zu Polyestern führt mit einem niedrigeren THF und DHF Gehalt.

3. Der Anspruchsgegenstand ist gewerblich anwendbar.

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

9

Applicant's or agent's file reference NAE19980978PC	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/05514	International filing date (day/month/year) 28 June 2000 (28.06.00)	Priority date (day/month/year) 29 June 1999 (29.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 63/78		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 29 January 2001 (29.01.01)	Date of completion of this report 23 July 2001 (23.07.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/05514

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
 pages 1-15, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of
- ☒ the claims:
 pages 1-10, as originally filed
 pages, as amended (together with any statement under Article 19
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of
- ☐ the drawings:
 pages, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

- These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:
- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages
- ☐ the claims, Nos.
- ☐ the drawings, sheets/fig

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/05514

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1. This report makes reference to the following documents:

D1: GB-A-2 184 129 (DAVY MCKEE AG), 17 June 1987 (1987-06-17) & DE-A-35 44 551, 19 June 1987 (1987-06-19), mentioned in the application

D2: DD-A-269 296 (ENGELS CHEMIEFASERWERK VEB.), 28 June 1989 (1989-06-28), mentioned in the application.

2. The claimed subject matter meets the requirements of PCT Article 33(2) and (3) in relation to the cited prior art.

D1 or D2 can be considered to be the closest prior art. The applicant has shown that the claimed method yields polyesters having a lower THF and DHF content than those obtained by the teachings of D1 or D2.

3. The claimed subject matter is industrially applicable.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts K 8050 PCT	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 06191	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/07/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 10/07/1999
Anmelder VOLKSWAGEN AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der Internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgend Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichten: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ wie in der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 F02D41/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 F02D F01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 580 389 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 26. Januar 1994 (1994-01-26) Spalte 1, Zeile 57 - Spalte 2, Zeile 16 Spalte 14, Zeile 6 - Spalte 15, Zeile 18 Abbildungen 9,15 ---	1
A	DE 197 53 718 C (DAIMLER CHRYSLER AG) 8. Juli 1999 (1999-07-08) Spalte 1, Zeile 1 - Zeile 31 Spalte 1, Zeile 52 - Zeile 60 Spalte 2, Zeile 23 - Zeile 63 Spalte 3, Zeile 9 - Zeile 48 Ansprüche 1,9,10 ---	1-4
A	DE 196 07 151 C (SIEMENS AG) 10. Juli 1997 (1997-07-10) Spalte 2, Zeile 4 - Zeile 6 Spalte 2, Zeile 18 - Spalte 3, Zeile 3 ---	1,2
-/-		



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

30. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

07/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Röttger, K

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 197 39 848 A (BOSCH GMBH ROBERT) 18. März 1999 (1999-03-18) Spalte 1, Zeile 46 - Zeile 51 Spalte 2, Zeile 54 -Spalte 3, Zeile 43 Spalte 5, Zeile 67 -Spalte 6, Zeile 9 Spalte 6, Zeile 66 -Spalte 7, Zeile 32 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/06191

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0580389 A	26-01-1994	JP 2605586 B JP 6088518 A DE 69300512 D DE 69300512 T US 5402641 A	30-04-1997 29-03-1994 26-10-1995 14-03-1996 04-04-1995
DE 19753718 C	08-07-1999	WO 9930021 A EP 0961876 A JP 2000508407 T	17-06-1999 08-12-1999 04-07-2000
DE 19607151 C	10-07-1997	WO 9731704 A EP 0822856 A	04-09-1997 11-02-1998
DE 19739848 A	18-03-1999	FR 2768181 A GB 2329263 A,B JP 11148337 A US 6119449 A	12-03-1999 17-03-1999 02-06-1999 19-09-2000

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts NAE19980978PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 05514	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 28/06/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 29/06/1999
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. _____

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ k in der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08G63/78

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 2 184 129 A (DAVY MCKEE AG) 17. Juni 1987 (1987-06-17) Ansprüche 1,3; Beispiel 33 Seite 2, Zeile 28 - Zeile 32 & DE 35 44 551 A 19. Juni 1987 (1987-06-19) in der Anmeldung erwähnt ----	1,2,4,5, 7-9
A	DE 195 09 551 A (BASF AG) 19. September 1996 (1996-09-19) Ansprüche 1-4; Beispiel 1 ----	1,4,5, 7-10
A	EP 0 046 670 A (CELANESE CORP) 3. März 1982 (1982-03-03) Ansprüche 1-3; Tabelle I Seite 10, Zeile 15 - Zeile 20 ----- -/-	1,4,5, 7-9



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

07/11/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Krische, D

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DD 269 296 A (ENGELS CHEMIEFASERWERK VEB) 28. Juni 1989 (1989-06-28) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ----	1
A	EP 0 240 279 A (CELANESE CORP) 7. Oktober 1987 (1987-10-07) Anspruch 1; Beispiel 1 Seite 3, Zeile 26 - Zeile 56 Seite 8, Zeile 51 -Seite 9, Zeile 3 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/05514

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 2184129	A	17-06-1987	DE 3544551 A	19-06-1987
			FR 2591604 A	19-06-1987
			JP 7100734 B	01-11-1995
			JP 62195017 A	27-08-1987
			KR 9306048 B	03-07-1993
			NL 8600567 A, B,	16-07-1987
			US 4680376 A	14-07-1987
DE 19509551	A	19-09-1996	WO 9628492 A	19-09-1996
			EP 0815158 A	07-01-1998
			JP 11501693 T	09-02-1999
			US 5854377 A	29-12-1998
EP 0046670	A	03-03-1982	US 4346213 A	24-08-1982
			CA 1161596 A	31-01-1984
			DE 3170406 D	13-06-1985
			JP 1703738 C	14-10-1992
			JP 3060849 B	18-09-1991
			JP 57073020 A	07-05-1982
			US 4439597 A	27-03-1984
DD 269296	A	28-06-1989	NONE	
EP 0240279	A	07-10-1987	US 4670580 A	02-06-1987
			AT 74586 T	15-04-1992
			BR 8701448 A	05-01-1988
			CA 1265527 A	06-02-1990
			DE 3778060 A	14-05-1992
			ES 2032294 T	01-02-1993
			GR 3004318 T	31-03-1993
			JP 8002957 B	17-01-1996
			JP 62241918 A	22-10-1987
			JP 10045887 A	17-02-1998
			KR 9504035 B	22-04-1995
			MX 165081 B	21-10-1992